

PATENT COOPERATION TREATY

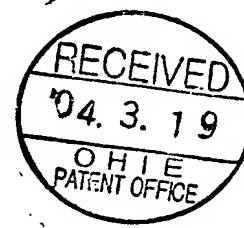
PCT

NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

OHIE, Kuniyisa
OHIE Patent Office
Horiguchi No.2 Bldg. 7F
2-6, Nihonbashi-Ningyocho
Chuo-ku, Tokyo 103-0013
Japan

Date of mailing (day/month/year) 09 March 2004 (09.03.2004)	
Applicant's or agent's file reference NKF-4810PCT	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP2003/016559	International filing date (day/month/year) 24 December 2003 (24.12.2003)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 27 December 2002 (27.12.2002)
Applicant NIKKO COMPANY et al	

- By means of this Form, which replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents, the applicant is hereby notified of the date of receipt by the International Bureau of the priority document(s) relating to all earlier application(s) whose priority is claimed. Unless otherwise indicated by the letters "NR", in the right-hand column or by an asterisk appearing next to a date of receipt, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- (If applicable) The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which, on the date of mailing of this Form, had not yet been received by the International Bureau under Rule 17.1(a) or (b). Where, under Rule 17.1(a), the priority document must be submitted by the applicant to the receiving Office or the International Bureau, but the applicant fails to submit the priority document within the applicable time limit under that Rule, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- (If applicable) An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b) (the priority document was received after the time limit prescribed in Rule 17.1(a) or the request to prepare and transmit the priority document was submitted to the receiving Office after the applicable time limit under Rule 17.1(b)). Even though the priority document was not furnished in compliance with Rule 17.1(a) or (b), the International Bureau will nevertheless transmit a copy of the document to the designated Offices, for their consideration. In case such a copy is not accepted by the designated Office as priority document, Rule 17.1(c) provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
27 Dec 2002 (27.12.2002)	2002-380096	JP	22 Janu 2004 (22.01.2004)

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 338.70.10

Authorized officer

Arounni WETZLER (Fax 338 7010)

Telephone No. (41-22) 338 8359

10/540014

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the Application of

JG20 Rec'd PCT/PTO 22 JUN 2005

Naoki KIDANI et al

Attn: Applications

Serial No.: To be assigned

Filed: June 22, 2005

For: LOW TEMPERATURE SINTERING CERAMIC COMPOSITION FOR USE IN HIGH FREQUENCY, METHOD OF FABRICATING THE SAME AND ELECTRONIC COMPONENT

CONFIRMATION OF CLAIM FOR PRIORITY

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, Virginia 22313-1450

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign application filed in the following foreign country is hereby requested for the above-identified application and the priority provided in 35 USC 119 is hereby claimed:

Japanese Application No. 2002-380096, filed December 27, 2002.

A copy of the priority document was filed in the International Stage (PCT).

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the requirements of 35 USC 119 have been fulfilled and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of this document.

Respectfully submitted,



Thomas P. Pavelko
Registration No. 31,674

TPP/mat
Attorney Docket No.: TPP 31769

STEVENS, DAVIS, MILLER & MOSHER, L.L.P.
1615 L Street, N.W., Suite 850
Washington, D.C. 20036
Telephone: (202) 785-0100
Facsimile: (202) 408-5200 or (202) 408-5088

Date: June 22, 2005

10 / 540014

22 JUN 2005

PCT/JP 03/16559

24.12.03

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

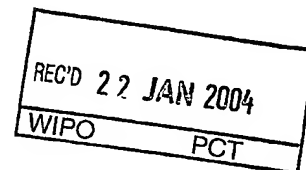
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2002年12月27日

出 願 番 号
Application Number: 特願2002-380096
[ST. 10/C]: [JP2002-380096]

出 願 人
Applicant(s): ニッコー株式会社

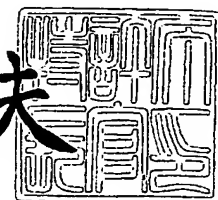


PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年11月12日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特2003-3093564

【書類名】 特許願
【整理番号】 NKP4410
【提出日】 平成14年12月27日
【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿
【国際特許分類】 C04B 35/00
【発明者】
 【住所又は居所】 石川県松任市相木町 3 8 3 番地 ニッコー株式会社内
 【氏名】 木谷 直樹
【発明者】
 【住所又は居所】 石川県松任市相木町 3 8 3 番地 ニッコー株式会社内
 【氏名】 水島 清
【発明者】
 【住所又は居所】 石川県松任市相木町 3 8 3 番地 ニッコー株式会社内
 【氏名】 滝本 幹夫
【特許出願人】
 【識別番号】 390010216
 【住所又は居所】 石川県松任市相木町 3 8 3 番地
 【氏名又は名称】 ニッコー株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100081086
 【住所又は居所】 東京都中央区日本橋人形町 2 丁目 2 番 6 号 堀口第 2 ビ
 ル 7 階 大家特許事務所
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 大家 邦久
 【電話番号】 03(3669)7714

【代理人】

【識別番号】 100117732

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋人形町2丁目2番6号 堀口第2ビル7階 大家特許事務所

【弁理士】

【氏名又は名称】 小澤 信彦

【電話番号】 03(3669)7714

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 043731

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0103237

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高周波用低温焼成磁器組成物及びその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 MgO と SiO_2 とを合計量で64～99.2質量%、 Bi_2O_3 4～33質量%及び Li_2O 0.4～3質量を含み、 MgO と SiO_2 の含有比が2：1～2：3.5（モル比）の範囲であり、その少なくとも一部を Mg と Si との複合酸化物として含有する低温焼成磁器組成物。

【請求項2】 前記複合酸化物がフォスフェイト系結晶相及び／またはエンスタタイト系結晶相であり、 Bi_2O_3 及び Li_2O の少なくとも一部を $Bi_2O_3-SiO_2$ 系結晶相及び Li_2O-SiO_2 系結晶相として含む請求項1記載の低温焼成磁器組成物。

【請求項3】 Qf 値が10,000以上である請求項1または2記載の低温焼成磁器組成物。

【請求項4】 MgO と SiO_2 とを2：1～2：3.5のモル比で含有する MgO と SiO_2 の混合物及び／または複合酸化物64～99.2質量%と、 Bi_2O_3 4～33質量%及び Li_2O 0.4～3質量とを含む原料粉を所定形状に成形後、850℃～1000℃で焼成する低温焼成磁器組成物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、低誘電率で低誘電損失の高周波用低温焼成磁器組成物及び低温焼成磁器の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、高度情報化時代を迎え、半導体素子には、高速化、高集積化及び実装の高密度化が求められている。半導体素子における高速化を進めるためには、配線長の短縮等に加え、回路上の信号伝播速度の高速化が不可欠であるが、信号伝播速度は基板材料の比誘電率の平方根に反比例するため、より低い誘電率の基板材料が必要である。また、高集積化や実装の高密度化のためには抵抗率の低い配線

材料（A g、A u、C u等）の使用が求められるが、これらの金属は融点が低い
ため、配線パターンの印刷後に基板を焼成する多層配線基板等では、低温焼成可
能な基板材料を用いる必要がある。このため、電子機器用基板材料として従来広
く用いられてきたアルミナ基板（誘電率：9～9.5、焼成温度：1500℃前後）は
高周波回路基板には適さず、これに代わる、より低い誘電率を有し低温焼成可能
な材料が必要とされている。また、マイクロ波、ミリ波帯域での低損失化も要求
されている。

【0003】

そこで、最近では、高速化に対応し得る低誘電率基板材料として、ガラスと無
機質フィラーとからなるガラスセラミック材料が検討されている。この種のガラ
スセラミック材料は、誘電率が3～7程度と低いことから高周波用絶縁基板とし
て適しており、また、800～1000℃の温度で焼成することができるため、導体
抵抗の低いA g、A u、C u等と同時焼成できるという特長がある。

【0004】

例えば、特許文献1には、ディオプサイド（C a M g S i₂O₆）型結晶相を析
出可能なガラス相と、フィラーとしてM g及び／またはZ nとT iとを含有する
酸化物を含む1000℃以下で焼成可能な高周波用磁器組成物が開示されている。ま
た、特許文献2には、S i O₂、A l₂O₃、M O（Mはアルカリ土類金属元素）
及びP bを含む結晶化ガラス成分と、A l₂O₃、S i O₂、M g T i O₃、（M g
， Z n） T i O₃、T i O₂、S r T i O₃、M g A l₂O₄、Z n A l₂O₄、コー
ジェライト、ムライト、エンスタタイト、ウイレマイト、C a A l₂S i₂O₈、
S r A l₂S i₂O₈、（S r， C a） A l₂S i₂O₈、フォルステライトの群から
選ばれる少なくとも1種のフィラーとからなる高周波用配線基板が開示されてい
る。

【0005】

【特許文献1】

特開2000-188017号公報

【特許文献2】

特開2001-240470号公報

【0006】

しかしながら、従来のガラスセラミックス材料は、誘電率は低くても、信号周波数10GHz以上の高周波帯域における誘電損失($\tan \delta$)が概ね 20×10^{-4} 以上と高く、すなわち、 Qf 値で $5 \times 10^3 \sim 8 \times 10^3$ 程度であり、高周波用基板材料として実用化し得るに十分な特性を有していない。なお、ここで Qf 値とは測定周波数(f/GHz)と Q ($\equiv 1/\tan \delta$)の積である。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

従って、本発明は、Ag、Au、Cu等の低抵抗金属と同時焼成が可能であり、しかも低誘電率及び高周波領域で低誘電損失を実現する低温焼成磁器組成物、及び低温焼成磁器の製造方法を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記問題点を解決するべく検討した結果、MgとSiとを特定の比率で含有する複合酸化物に Bi_2O_3 と Li_2O を添加した組成物は、850～1000℃程度の温度で焼成可能であり、かかる組成物を焼成して得られる低温焼成磁器は、低い比誘電率と低い誘電損失を有することを見出し、本発明を完成するに至った。

【0009】

すなわち、本発明は、以下の低温焼成磁器組成物及び低温焼成磁器の製造方法を提供する。

(1) MgOと SiO_2 とを合計量で64～99.2質量%、 Bi_2O_3 0.4～33質量%及び Li_2O 0.4～3質量を含み、MgOと SiO_2 の含有比が2:1～2:3.5(モル比)の範囲であり、その少なくとも一部をMgとSiとの複合酸化物として含有する低温焼成磁器組成物。

【0010】

(2) 前記複合酸化物がフォルステライト系結晶相及び／またはエンスタイト系結晶相であり、 Bi_2O_3 及び Li_2O の少なくとも一部を $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系結晶相及び $\text{Li}_2\text{O-SiO}_2$ 系結晶相として含む前記1記載の低温焼成磁器組成

物。

(3) Qf 値が10,000以上である前記1または2記載の低温焼成磁器組成物。

(4) MgO と SiO_2 とを2:1~2:3.5のモル比で含有する MgO と SiO_2 の混合物及び/または複合酸化物64~99.2質量%と、 Bi_2O_3 0.4~33質量%及び Li_2O 0.4~3質量%を含む原料粉を所定形状に成形後、850℃~1000℃で焼成する低温焼成磁器の製造方法。

【0011】

【発明の実施の形態】

(A) 磁器組成物

本発明の低温焼成磁器組成物は、 MgO と SiO_2 とを合計量で64~99.2質量%、 Bi_2O_3 0.4~33質量%及び Li_2O 0.4~3質量%を含み、 MgO と SiO_2 の含有比が2:1~2:3.5(モル比)の範囲であり、その少なくとも一部を Mg と Si との複合酸化物として含有する低温焼成磁器組成物である。

Mg 、 Si を含有する複合酸化物に対して Bi_2O_3 と Li_2O とを含有させることにより、加熱時、 Bi_2O_3 - SiO_2 系液相と Li_2O - SiO_2 系液相とが形成され、この液相反応を介して850~1000℃程度の温度で焼成できる。

【0012】

本発明の低温焼成磁器組成物は、 MgO と SiO_2 とを合計量で64~99.2質量%、好ましくは75~98質量%、 Bi_2O_3 0.4~33質量%、好ましくは1.5~24.5質量%、 Li_2O 0.4~3質量%、好ましくは0.5~3.0質量%の範囲である(合計で100質量%とする)。

MgO と SiO_2 の含有量が過少であると、これらを主相とすることによる高 Qf という特徴が損なわれる。また、過剰だと低温焼結性が喪失する。 Bi_2O_3 の含有量が過少であると低温焼結性が実現できない。また、過剰だと嵩密度が4g/cm³以上となる上、さらに2 Bi_2O_3 ・3 SiO_2 が主相となるため誘電率が高くなり望ましくない。 Li_2O の含有量が過少であると低温焼結性が実現できない。また、過剰だと17GHzの高周波領域における誘電損失が 10×10^{-4} 以上と高く、高 Qf 値を実現できない。

【0013】

MgOとSiO₂の含有比は2:1~2:3.5(モル比)の範囲とする。MgO/SiO₂が2/3.5未満でも2/1を超えても焼結性が低下し、磁器が緻密化しなくなる。望ましい範囲は、2:1.5~2:3.0である。

MgとSiの複合酸化物は、MgOとSiO₂の量比が上記範囲を満たすものであればよいが、 $n\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$ と表わしたときに $1 \leq n \leq 2$ を満足する複合酸化物を主成分とする。 $n=2$ の複合酸化物結晶($2\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$)はフォルステライト(Forsterite)として知られ、 $n=1$ の複合酸化物結晶($\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$)はエンスタタイト(Enstatite)として知られる。

【0014】

従って、本発明の低温焼成磁器は、フォルステライト系結晶相及び/またはエンスタタイト系結晶相を主体とし、さらにBi₂O₃-SiO₂系結晶相及びLi₂O-SiO₂系結晶相から主として構成されるものである。ここで、「フォルステライト系結晶相」とはフォルステライト及びこれに類する結晶相であり、磁器組成物の成分から構成される同型の結晶相(例えば、Li₂MgSiO₄)を含んでもよい。エンスタタイト系結晶相、Bi₂O₃-SiO₂系結晶相及びLi₂O-SiO₂系結晶相についても同様である。

目標とする物性値を実現するものであれば各相の具体的な含有比は限定されないが、通常は、フォルステライト系結晶相及び/またはエンスタタイト系結晶相を磁器の全体積の60%以上含み、好ましくは80%以上、より好ましくは90%以上、さらに好ましくは95%以上を含む。

なお、発明の効果を損なわない限りにおいて、SiO₂系結晶相等や非晶質等を含んでも良い。

本発明の低温焼成磁器は、Qf値が10,000以上であり、850℃~1000℃の温度範囲での焼成によって相対密度95%以上まで緻密化されたものである。

【0015】

(B) 低温焼成磁器の製造方法

本発明の低温焼成磁器は、MgOとSiO₂とを2:1~2:3.5のモル比で含有するMgOとSiO₂の混合物及び/または複合酸化物64~99.2質量%と、Bi₂O₃0.4~33質量%及びLi₂O0.4~3質量%を含む原料粉を所定形状に成

形後、850℃～1000℃で焼成することにより製造できる。

主原料であるMgとSiO₂は各金属酸化物の混合物でもよいが、フォルステライト(2Mg・SiO₄)等の複合酸化物にSiO₂とMgOを必要量混合したものでもよい。出発原料として用い得るMgOとSiO₂は、各金属の酸化物粉末のほかに、焼結過程で酸化物を形成し得る炭酸塩、酢酸塩、硝酸塩等の形態で添加できる。

【0016】

上記の主成分原料に対して、焼結助剤としてBi₂O₃粉末、Li₂O粉末を上記の割合、好ましくは主成分原料75～98質量%、Bi₂O₃1.5～24.5質量%、Li₂O0.5～3.0質量の範囲となるように添加混合する。Bi₂O₃とLi₂Oも、各金属の酸化物粉末のほかに、焼結過程で酸化物を形成し得る炭酸塩、酢酸塩、硝酸塩等の形態で添加できる。

Mg₂SiO₄、SiO₂、MgO、Bi₂O₃、Li₂O等の原料粉末は分散性を高め、望ましい誘電率や低誘電損失を得るために2.0μm以下、特に1.0μm以下の微粉末とすることが望ましい。

【0017】

上記の割合で添加混合した混合粉末に適宜バインダーを添加した後、例えば、金型プレス、押し出し成形、ドクターブレード法、圧延法等により任意の形状に成形後、酸化雰囲気中または、N₂、Ar等の非酸化性雰囲気中において850℃～1000℃、特に850℃～950℃の温度で1～3時間焼成することにより相対密度95%以上に緻密化することができる。この時の焼成温度が850℃より低いと、磁器が十分に緻密化せず、1000℃を越えると緻密化は可能であるが、Ag、Au、Cu等の低融点な導体を配線材料として用いることが難しくなる。

【0018】

本発明の方法によれば、Mg及びSiの複合酸化物である固相とBi₂O₃-SiO₂系液相及びLi₂O-SiO₂系液相とのより活性な固液反応が生じる結果、少ない焼結助剤量で磁器を緻密化することができる。そのために、誘電損失を増大させる要因となる粒界の非晶質相の量を最小限に抑えることができる。このように本発明の製造方法によれば、磁器中に、少なくともMgとSiを含むフォル

ステライト系結晶相及び／またはエンスタタイト系結晶相、 $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系結晶相及び $\text{Li}_2\text{O-SiO}_2$ 系結晶相を析出させることにより、17kHz程度でも比誘電率を9以下に制御できるとともに、低誘電損失、従って高Qf値の高周波用磁器を得ることができる。

【0019】

(C) 磁器組成物の用途

本発明における磁器組成物は、850～1000℃で焼成可能であることから、特にAg、Au、Cuなどを配線する配線基板の絶縁基板として用いることができる。かかる磁器組成物を用いて配線基板を作製する場合には、例えば、上記のようにして調合した混合粉末を公知のテープ成形法、例えばドクターブレード法、押し出し成形等に従い、絶縁層形成用のグリーンシートを作製した後、そのシートの表面に配線回路層用として、Ag、Au及びCuのうちの少なくとも1種の金属、特に、Ag粉末を含む導体ペーストを用いて、グリーンシート表面にスクリーン印刷法等によって配線パターンを回路パターン状に印刷し、場合によってはシートにスルーホールやビアホール形成後、上記導体ペーストを充填する。その後、複数のグリーンシートを積層圧着した後、上述した条件で焼成することにより、配線層と絶縁層とを同時に焼成することができる。

【0020】

【実施例】

以下、実施例及び比較例により本発明を具体的に説明するが、これらは本発明を限定するものではない。

実施例1～34

平均粒径が $1\mu\text{m}$ 以下の Mg_2SiO_4 、 MgO 、 SiO_2 、 Bi_2O_3 、 Li_2CO_3 を酸化物換算の含有比が表1の割合となるように混合した。これらの混合物に有機バインダー、可塑剤、トルエンを添加し、ドクターブレード法により厚さ $150\mu\text{m}$ のグリーンシートを作成した。そして、このグリーンシートを5枚積層し、70℃の温度で $150\text{kg}/\text{cm}^2$ の圧力を加えて熱圧着した。得られた積層体を大気中で、500℃で脱バインダーした後、大気中で表1の条件下に焼成して多層基板用磁器を得た。なお、表1には、原料混合物中のMg及びSiの

含有量合計(酸化物換算値)及び MgO/SiO_2 比も併せて示した。

【0021】

得られた焼結体について誘電率、誘電損失を以下の方法で評価した。測定はJIS R1627「マイクロ波用ファインセラミックスの誘電率特性の試験方法」に準じて行った。すなわち、上記の多層基板用磁器を直径1~5mm、厚み2~3mmの試料の円盤状に切り出し、円盤状試料の両端面を2枚の平行導体板で短絡して誘電体共振器を構成し、この誘電体共振器の TE_{011} モードの共振特性と無負荷 Q を17~20GHzでネットワークアナライザー(ヒューレット・パッカード社製8722C)を用いて測定し、誘電率と誘電損失($\tan \delta$)を算定し、測定周波数と Q ($=1/\tan \delta$)から Qf 値を計算した。結果を表2に示す。

また、各試料についてX線回折測定を行い、標準試料のX線回折ピークとの比較によって磁器の構成相を同定したところ、フォルステライト結晶相($2\text{Mg} \cdot \text{SiO}_4$)及び/またはエンスタタイト結晶相($\text{Mg} \cdot \text{SiO}_4$)、 $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系結晶相(典型的には、ユーリタイト $2\text{Bi}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{SiO}_4$)、 $\text{Li}_2\text{O-SiO}_2$ 系結晶相の各相の存在が確認された。

【0022】

以上の結果から明らかなように、 MgO 、 SiO_2 、 Bi_2O_3 及び Li_2O を本発明の範囲で含み、結晶相として、フォルステライト系結晶相及び/またはエンスタタイト系結晶相、 $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系結晶相、 $\text{Li}_2\text{O-SiO}_2$ 系結晶相が主として析出した本発明の磁器は、いずれも誘電率が9以下、 Qf 値が10,000以上の優れた値を示す。但し、 Bi の含有量が増すと嵩密度が増加する傾向があり、本発明における Bi の上限値33質量%(実施例33)では嵩密度が4.0に達した。

【0023】

比較例1~10

平均粒径が $1\mu\text{m}$ 以下の Mg_2SiO_4 、 MgO 、 SiO_2 、 Bi_2O_3 、 Li_2CO_3 を各酸化物換算の組成が表1の割合となるように混合し、実施例1~34と同様にして、表1の条件下に焼成して多層基板用磁器を得た。結果を表2にまとめて示す。

Bi_2O_3 、 Li_2O を添加していない試料では低温焼成が不可能であり（比較例 1）、 Bi_2O_3 量が0.4質量%未満である試料（比較例 10）及び Li_2O 量が0.4質量%未満である試料（比較例 3～7）では焼結しない。 Li_2O 量が3質量%を超えると誘電損失が大きく Qf 値が10,000未満になる。 MgO/SiO_2 比が2/1を超える試料（比較例 8 及び 9）では焼結しなくなる。

【0024】

【表 1】

No.	本組成比	本組成		本組成		液相		焼成 温度 (°C)	保持 (hr)	
		モル比		質量%		質量%				
		MeO	SiO ₂	MeO	SiO ₂	Bi ₂ O ₃	Li ₂ O			
実施例	1	93	2	1	53.3	39.7	5.00	2.00	883	1
	2	93	2	1.5	43.9	49.1	5.00	2.00	883	1
	3	95	2	1.5	44.8	50.2	3.57	1.43	883	1
	4	91	2	1.5	43.0	48.0	6.43	2.57	883	1
	5	93	2	2	37.3	55.7	5.00	2.00	883	1
	6	95	2	2	38.1	56.9	4.50	0.50	904	1
	7	95	2	2	38.1	56.9	4.00	1.00	904	1
	8	94	2	2	37.7	56.3	4.50	1.50	910	1
	9	93.5	2	2	37.5	56.0	4.50	2.00	910	1
	10	94.5	2	2	37.9	56.6	5.00	0.50	950	1
	11	93.5	2	2	37.5	56.0	6.00	0.50	950	1
	12	92.5	2	2	37.1	55.4	7.00	0.50	950	1
	13	93	2	2.5	32.5	60.5	5.00	2.00	883	1
	14	95	2	2.5	33.2	61.8	4.00	1.00	885	1
	15	95	2	2.5	33.2	61.8	3.00	2.00	885	1
	16	93	2	2.5	32.5	60.5	6.50	0.50	954	1
	17	91	2	2.5	31.8	59.2	8.50	0.50	954	1
	18	93	2	3	28.7	64.3	5.00	2.00	883	1
	19	95	2	1.5	44.8	50.2	4.50	0.50	961	1
	20	95	2	1.5	44.8	50.2	4.00	1.00	961	1
	21	95	2	1.3	48.2	46.8	4.00	1.00	885	1
	22	85	2	2	34.1	50.9	14.50	0.50	950	1
	23	90	2	2	36.1	53.9	9.50	0.50	950	1
	24	98	2	2	39.3	58.7	1.50	0.50	950	1
	25	97.5	2	2	39.1	58.4	1.50	1.00	893	1
	26	97	2	2	38.9	58.1	2.50	0.50	955	1
	27	96.5	2	2	38.7	57.8	2.50	1.00	893	1
	28	80	2	2	32.1	47.9	19.50	0.50	893	1
	29	75	2	2	30.1	44.9	24.50	0.50	893	1
	30	95	2	3	29.3	65.7	4.00	1.00	890	1
	31	95	2	3.5	26.3	68.7	4.00	1.00	890	1
	32	69.5	2	2	27.9	41.6	30.00	0.50	908	1
	33	66.5	2	2	26.7	39.8	33.00	0.50	908	1
	34	98.5	2	2	39.5	59.0	0.50	1.00	959	1
比較例	1	100	2	1	57.3	42.7	0.00	0.00	1402	3
	2	89	2	1.5	42.0	47.0	7.86	3.14	883	1
	3	95	2	2	38.1	56.9	5.00	0.00	910	1
	4	95	2	2.5	33.2	61.8	4.75	0.25	954	1
	5	94	2	2.5	32.8	61.2	5.75	0.25	954	1
	6	95	2	2	38.1	56.9	4.70	0.30	950	1
	7	95	2	2	38.1	56.9	4.90	0.10	950	1
	8	95	2	0.8	59.5	35.5	4.00	1.00	943	1
	9	94	2	0.8	58.9	35.1	4.00	2.00	943	1
	10	98.7	2	2	39.6	59.1	0.30	1.00	959	1

【0025】

【表 2】

No.	嵩密度 (g/cm ³)	周波数 (GHz)	誘電率	Q	Q f	
実施例	1	3.18	18.2	6.98	707	12862
	2	3.25	17.9	7.17	789	14125
	3	3.23	17.9	7.15	794	14218
	4	3.24	17.9	7.20	575	10284
	5	3.24	17.9	7.20	952	17048
	6	3.15	18.3	6.84	3374	61748
	7	3.24	18.4	7.15	1115	20516
	8	3.24	18.5	7.12	604	11174
	9	3.24	18.8	7.17	539	10124
	10	3.24	19.5	6.98	2725	53128
	11	3.24	20.0	6.98	2332	46644
	12	3.22	20.1	6.96	1101	22120
	13	3.17	18.2	6.80	921	16759
	14	3.15	18.3	6.72	1220	22326
	15	3.07	18.3	6.67	947	17330
	16	3.11	19.9	6.62	1007	20031
	17	3.14	19.8	6.76	973	19257
	18	3.13	18.5	6.50	861	15934
	19	3.17	18.8	6.87	3559	66902
	20	3.16	19.1	6.91	1012	19322
	21	3.21	18.5	6.92	1230	22748
	22	3.49	18.9	7.51	2287	43227
	23	3.37	18.8	7.28	2551	47950
	24	3.07	19.6	6.68	1902	37284
	25	3.13	18.5	6.87	1343	24789
	26	3.16	18.4	6.96	1729	31792
	27	3.17	18.8	6.88	586	11043
	28	3.64	17.8	7.79	2176	38659
	29	3.77	17.5	8.07	2117	36944
	30	3.10	18.4	6.42	1105	20368
	31	3.04	18.6	6.21	973	18099
	32	3.88	16.9	8.43	2401	40549
	33	4.00	16.8	8.59	2304	38707
	34	3.12	18.9	6.95	814	15428
比較例	1	2.99	20.7	6.41	8091	167484
	2	3.26	17.9	7.26	462	8275
	3	未焼結	-	-	-	-
	4	未焼結	-	-	-	-
	5	未焼結	-	-	-	-
	6	未焼結	-	-	-	-
	7	未焼結	-	-	-	-
	8	未焼結	-	-	-	-
	9	未焼結	-	-	-	-
	10	未焼結	-	-	-	-

【0026】

比較例 11~12

B i に代え B を用いた他は実施例 6 とほぼ同様の条件で調製した組成物を 953℃で焼成したところ、1 時間の焼成で焼結しなかった。また、B i に代え B を用いた他は実施例 8 と同様の組成物を 953℃で 1 時間かけて焼成したところ、得られた磁器組成物は誘電率 6.86 であり低誘電率は実現されていたが、18.8 GHz での Q 値は 410 であり、Q f 値 (7716.3) は 10,000 未満であった。具体的な組成及び結果を表 3 と表 4 に示す。

【0027】

【表 3】

No.	本組成比	本組成 モル比		本組成 質量%		液相 質量%	
		MgO	SiO ₂	MgO	SiO ₂	B ₂ O ₃	Li ₂ O
比較例 11	95	2	2	38.1	56.9	4.5	0.5
比較例 12	94	2	2	37.7	56.3	4.5	1.5

【0028】

【表 4】

No.	焼成温度 ℃	保持 hr	嵩密度 g/cm ³	周波数 GHz	誘電率	Q	Qf
比較例 11	953	1	未焼結	-	-	-	-
比較例 12	953	1	3.03	18.8	6.86	410	7716

【0029】

【発明の効果】

以上詳述した通り、本発明の低温焼成磁器組成物は、液相形成成分として B i と L i の酸化物を用いた結果、フォルステライト系結晶相及び／またはエンスタタイト系結晶相を主相とする磁器組成物において低温焼結性を実現した。また、Bi₂O₃は多量に導入しても誘電損失を低下させないことが判明し、これにより高 Q f 値を実現できる。従って、本発明によれば、17 GHz 以上の高周波域で利用できる誘電率 (9 以下)、高 Q f (10,000 以上) の低損失 LTCC (低温焼

成多層基板) 材料として最適であり、各種のマイクロ波用回路素子等において利用できる。しかも、850℃～1000℃で焼成できるため、Cu、Au、Ag等による配線を同時焼成により形成することができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 1000℃以下で焼成可能であり、17GHz以上の高周波領域において低い比誘電率と、低い誘電損失を有する低温焼成磁器組成物及び低温焼成磁器の製造方法を提供する。

【解決手段】 MgOとSiO₂とを2:1~2:3.5のモル比で含有するMgOとSiO₂の混合物及び／または複合酸化物64~99.2質量%と、Bi₂O₃0.4~33質量%及びLi₂O0.4~3質量%を含む原料粉を所定形状に成形後、850℃~1000℃で焼成し、MgとSiを含む結晶相、Bi₂O₃-SiO₂系結晶相及びLi₂O-SiO₂系結晶相とを含む、ミリ波領域(17GHz)での誘電率(ϵ_r)が9以下、Qf値が10,000以上の誘電体磁器を得る。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2002-380096
受付番号	50201986489
書類名	特許願
担当官	森吉 美智枝 7577
作成日	平成 15 年 1 月 8 日

< 認定情報・付加情報 >

【特許出願人】

【識別番号】	390010216
【住所又は居所】	石川県松任市相木町 383 番地
【氏名又は名称】	ニッコー株式会社

【代理人】

申請人

【識別番号】	100081086
【住所又は居所】	東京都中央区日本橋人形町 2 丁目 2 番 6 号 堀口 第 2 ビル 7 階 大家特許事務所
【氏名又は名称】	大家 邦久

【代理人】

【識別番号】	100117732
【住所又は居所】	東京都中央区日本橋人形町 2 丁目 2 番 6 号 堀口 第二ビル 7 階 大家特許事務所
【氏名又は名称】	小澤 信彦

次頁無

特願 2002-380096

出願人履歴情報

識別番号

[390010216]

1. 変更年月日
[変更理由]

1990年10月26日

新規登録

住所
氏名

石川県松任市相木町383番地
ニッコー株式会社